

PAT-NO: JP406057101A
DOCUMENT-IDENTIFIER: JP 06057101 A
TITLE: FLAME-RETARDANT EPOXY RESIN COMPOSITION
PUBN-DATE: March 1, 1994

INVENTOR-INFORMATION:
NAME
TODA, TAKASHI

ASSIGNEE-INFORMATION:
NAME COUNTRY
MURATA MFG CO LTD N/A

APPL-NO: JP04208749
APPL-DATE: August 5, 1992

INT-CL (IPC): C08L063/00, C08K003/00, C08G059/30
US-CL-CURRENT: 524/786

ABSTRACT:

PURPOSE: To provide a thermosetting resin composition for use as a coating material for electronic parts which is excellent in all of flame retardancy, mechanical strength, and moisture resistance.

CONSTITUTION: This resin composition comprises (A) an epoxy resin, (B) an inorganic filler, and (C) additives including a coloring pigment, a rheological control agent, and a hardener, the amounts of the components (A) and (B) being 10-12wt.% and 75-77wt.% respectively, based on the total amount of the components (A) to (C). The component (A) comprises a brominated epoxy resin in such an amount that the bromine content is 14-16wt.% based on the whole component (A). The component (B) contains aluminum hydroxide in an amount of 12-22wt.% based on the whole component (B).

COPYRIGHT: (C)1994, JPO&Japio

AN 1994:459341 CAPLUS
 DN 121:59341
 OREF 121:10681a,10684a
 ED Entered STN: 06 Aug 1994
 TI Flame- and humidity-resistant epoxy resin compositions with high strength
 for potting of electronic devices
 IN Toda, Takashi
 PA Murata Manufacturing Co, Japan
 SO Jpn. Kokai Tokkyo Koho, 5 pp.
 CODEN: JKXXAF
 DT Patent
 LA Japanese
 IC ICM C08L063-00
 ICS C08K003-00
 ICA C08G059-30
 CC 38-3 (Plastics Fabrication and Uses)
 Section cross-reference(s): 37, 76

FAN.CNT 1

| | PATENT NO. | KIND | DATE | APPLICATION NO. | DATE |
|------|----------------|------|----------|-----------------|--------------|
| PI | JP 06057101 | A | 19940301 | JP 1992-208749 | 19920805 <-- |
| | JP 3099537 | B2 | 20001016 | | |
| PRAI | JP 1992-208749 | | 19920805 | | |

AB The title compns. contain epoxy resins, brominated epoxy resins, Al(OH)3, fillers, pigments, rheol. control agents, and hardeners. A composition containing

bisphenol A epoxy resin, tetrabromobisphenol A epoxy resin, novolak epoxy resin, MEK, TiO2, Cromophtal Blue, fatty acid-treated CaCO3, imidazole, phenolic novolak, talc, amorphous spherical SiO2 particles, and Al(OH)3 was cured to give a material showing fire resistance (UL 94) V-0 and flexural strength ≥ 4 kg/cm2 (JIS K6911).

ST waterproofing epoxy resin potting; bromobisphenol epoxy fireproofing potting; talc filler epoxy potting; silica filler epoxy potting; aluminum hydroxide fireproofing epoxy potting

IT Fireproofing agents
 (aluminum hydroxide and brominated resins, for epoxy resin potting compns.)

IT Water-resistant materials
 (epoxy resin potting compns., fireproofing agent-containing)

IT Potting compositions
 (epoxy resins, fireproofing agent-containing, water-resistant)

IT Epoxy resins, uses
 RL: USES (Uses)
 (potting compns. containing fireproofing agents and, water-resistant)

IT Phenolic resins, uses
 RL: USES (Uses)
 (epoxy, novolak, potting compns. containing fireproofing agents and, water-resistant)

IT Phenolic resins, uses
 RL: USES (Uses)
 (novolak, hardeners, for epoxy resin potting compns. containing fireproofing agents)

IT Epoxy resins, uses
 RL: USES (Uses)
 (phenolic, novolak, potting compns. containing fireproofing agents and, water-resistant)

IT Epoxy resins, uses
 RL: USES (Uses)
 (tetrabromobisphenol A-based, potting compns. containing, fire- and water-resistant)

IT 471-34-1, Calcium carbonate, uses 7631-86-9, Silica, uses 14807-96-6,
Talc, uses
RL: USES (Uses)
(fillers, in epoxy resin potting compns. containing fireproofing agents)

IT 21645-51-2, Aluminum hydroxide, uses
RL: USES (Uses)
(fireproofing agents, for epoxy resin potting compns.)

IT 13463-67-7, Titanium oxide, uses 83453-00-3, Cromophtal Blue
RL: USES (Uses)
(pigments, in epoxy resin potting compns.)

DERWENT-ACC-NO: 1994-106948

DERWENT-WEEK: 200054

COPYRIGHT 2008 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Fire retardant epoxy! resin compsns includes brominated-epoxy! resin, inorganic filler contg aluminium hydroxide, pigment rheology controlling agent and curing agent

INVENTOR: TODA T

PATENT-ASSIGNEE: MURATA MFG CO LTD[MURA]

PRIORITY-DATA: 1992JP-208749 (August 5, 1992)

PATENT-FAMILY:

| PUB-NO | PUB-DATE | LANGUAGE |
|---------------|------------------|----------|
| JP 06057101 A | March 1, 1994 | JA |
| JP 3099537 B2 | October 16, 2000 | JA |

APPLICATION-DATA:

| PUB-NO | APPL-DESCRIPTOR | APPL-NO | APPL-DATE |
|--------------|-----------------|---------------|----------------|
| JP 06057101A | N/A | 1992JP-208749 | August 5, 1992 |
| JP 3099537B2 | Previous Publ | 1992JP-208749 | August 5, 1992 |

INT-CL-CURRENT:

| TYPE | IPC | DATE |
|------|-----------|----------|
| CIPP | C08G59/30 | 20060101 |
| CIPS | C08K3/00 | 20060101 |
| CIPS | C08K3/22 | 20060101 |
| CIPS | C08L63/00 | 20060101 |

ABSTRACTED-PUB-NO: JP 06057101 A

BASIC-ABSTRACT:

A fire retardant epoxy resin compsn. comprises (A) an epoxy resin contg. a brominated epoxy resin in an amt. of Br of 14-16 wt.% per total wt. of the epoxy resin, (B) an inorganic filler contg. 12-22 wt.% of aluminium hydroxide per total wt. of the inorganic filler and (C) additives contg. a colouring pigment, a rheology controlling agent and a curing agent with respective contents of (A) and (B) being 10-12 and 75-77 wt.% w.r.t. total wt. of (A)+(B)+(C) and (A)+(B)+(C) = 100 wt.%.

USE/ADVANTAGE - The fire retardant epoxy resin compsns. are thermosetting, have good fire retardancy, mechanical strength and water moisture resistance and are useful for electronic parts exterior materials for mfg. reliable electronic parts.

In an example, a total of 10 wt.% bisphenol A epoxy resin, novolak epoxy resin and a reaction prod. with a Br of 47-51 wt.% of tetrabromobisphenol A and epichlorohydrin (35:35:30 by wt.) were dissolved in methyl ethyl ketone to give varnish, a total of 13 wt.% of additives contg. 4 wt.% titanium oxide as pigment, 0.6 wt.% Chromophthal Blue as pigment, 3 wt.% fatty acid-treated calcium carbide as rheology controlling agent, 3-4 wt.% of a phenol novolak as

curative and 0.05 wt.% imidazole as curing accelerator were added to the varnish, the mixt. was stirred, to the mixt., were added a total of 78 wt.% of talc, silicon oxide and aluminium hydroxide (11:77:12 by wt.) and methyl ethyl ketone and the mixt. was blended well to give a resin compsn. with a resin content of 79 wt.%.

TITLE-TERMS: FIRE RETARD POLYEPOXIDE RESIN COMPOSITION BROMINATED INORGANIC
FILL CONTAIN ALUMINIUM HYDROXIDE PIGMENT RHEOLOGICAL CONTROL AGENT
CURE

DERWENT-CLASS: A21 A85 E19 E33 L03 V04 X12

CPI-CODES: A05-A01B; A08-D01; A08-E01; A08-F05; A08-M06; A08-R01; A10-E04A;
A12-E01; E31-N05A; E34-C02; E35-K02; L03-J;

EPI-CODES: V04-S02;

CHEMICAL-CODES:

Chemical Indexing M3 *01*

Fragmentation Code

A313 A940 C101 C108 C550 C730 C801 C802 C804 C805

C807 M411 M782 Q130 Q622

Specific Compounds

R02020

Registry Numbers

129331 87080

Chemical Indexing M3 *02*

Fragmentation Code

A422 A940 C108 C550 C730 C801 C802 C803 C804 C805

C807 M411 M782 Q130 Q622

Specific Compounds

R01966

Registry Numbers

132811 132812 132813 155480 686

Chemical Indexing M3 *03*

Fragmentation Code

A220 A940 C106 C550 C730 C801 C802 C803 C805 C806

C807 M411 M782 Q130 Q622

Specific Compounds

R04712

Registry Numbers

130191

Chemical Indexing M3 *04*

Fragmentation Code

F000 F521 M280 M320 M413 M510 M521 M530 M540 M782

Q130 Q622

Specific Compounds

R01193

Registry Numbers

294

Chemical Indexing M3 *05*

Fragmentation Code

J0 J011 J1 J171 M211 M212 M213 M214 M215 M216

M220 M221 M222 M223 M224 M225 M226 M231 M232 M233

M262 M281 M320 M416 M620 M782 Q130 Q622

Specific Compounds

(19)日本国特許庁(J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平6-57101

(43)公開日 平成6年(1994)3月1日

| | | | | |
|--------------------------|-------|----------|-----|--------|
| (51)Int.Cl. ⁵ | 識別記号 | 庁内整理番号 | F I | 技術表示箇所 |
| C 0 8 L 63/00 | N J W | 8830-4 J | | |
| C 0 8 K 3/00 | N K T | 7242-4 J | | |
| # C 0 8 G 59/30 | N H R | 8416-4 J | | |

審査請求 未請求 請求項の数 1 (全 5 頁)

| | | | |
|----------|----------------|---------|--|
| (21)出願番号 | 特願平4-208749 | (71)出願人 | 000006231 株式会社村田製作所 京都府長岡京市天神二丁目26番10号 |
| (22)出願日 | 平成4年(1992)8月5日 | (72)発明者 | 戸田 崇 京都府長岡京市天神二丁目26番10号 株式 会社村田製作所内 |
| | | (74)代理人 | 弁理士 深見 久郎 (外2名) |

(54)【発明の名称】 難燃性エポキシ樹脂組成物

(57)【要約】

【目的】 難燃性、機械的強度および耐湿性のいずれにも優れた電子部品外装用の熱硬化性樹脂組成物を提供する。

【構成】 エポキシ樹脂(A)、無機充填剤(B)、ならびに、着色顔料、レオロジーコントロール剤および硬化剤を含む添加剤(C)よりなり、エポキシ樹脂(A)および無機充填剤(B)の割合が、A、BおよびCの総重量に対して、それぞれ、10～12重量%および75～77重量%の範囲にあり(ただし、A、BおよびC成分の合計は100重量%とする。)、エポキシ樹脂は、エポキシ樹脂総重量に対して臭素が14～16重量%の範囲になるように、臭素化エポキシ樹脂を含み、無機充填剤は、無機充填剤総重量に対して12～22重量%の範囲で水酸化アルミニウムを含む、難燃性エポキシ樹脂組成物。

1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 エポキシ樹脂（A）、無機充填剤（B）、ならびに着色顔料、レオロジーコントロール剤および硬化剤を含む添加剤（C）よりなり、エポキシ樹脂（A）および無機充填剤（B）の割合が、A、BおよびCの総重量に対して、それぞれ、10～12重量%および75～77重量%の範囲にあり（ただし、A、BおよびC成分の合計は100重量%とする。）、

エポキシ樹脂は、エポキシ樹脂総重量に対して臭素が14～16重量%の範囲になるように、臭素化エポキシ樹脂を含む、

無機充填剤は、無機充填剤総重量に対して12～22重量%の範囲で水酸化アルミニウムを含む、難燃性エポキシ樹脂組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 この発明は、電子部品の外装用として用いるのに適した熱硬化性の難燃性エポキシ樹脂組成物に関するもので、特に、難燃性に加えて、機械的強度および耐湿性の向上を図るための改良に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 従来、難燃性を有する熱硬化性樹脂組成物としては、キシレンフェノール樹脂、シリコーン樹脂、フッ素樹脂、臭素化エポキシ樹脂などの難燃性樹脂、あるいは、炭酸カルシウム、水酸化アルミニウム、酸化アンチモン、酸化ホウ素、ブロム化合物、クロル化合物、リン化合物、リン/ハロゲン化合物などの無機充填剤もしくは難燃剤を使用するものが知られている。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】 しかし、従来知られているこれら難燃性を有する組成物は、工業的に電子部品の外装材料として使用されているものもあるが、電子部品に必要な電気的特性およびその他の条件を必ずしも満足しているとはいえない。

【0004】 すなわち、難燃性を有するベース樹脂を用いる、キシレンフェノール樹脂の場合は、耐湿性の点で、シリコーン樹脂の場合は、耐湿性と製品コストの点で、フッ素樹脂の場合は、電気的特性と製品コストの点で、また、臭素化エポキシ樹脂の場合は、耐湿性の点で、それぞれ満足されない、という欠点を有している。

【0005】 同様に、無機充填剤によって難燃性を付与する場合には、炭酸カルシウムでは、耐湿性と機械的強度の点で、また、水酸化アルミニウムでは、貯蔵安定性などの作業性と機械的強度の点で、それぞれ満足されない、という問題がある。また、リン系難燃剤は、毒性が強く、ヘキサプロモベンゼンは、耐湿性が劣化するのに加えて、環境破壊の関与から使用が制限されつつあるのが現状である。

2

【0006】 それゆえに、この発明の目的は、電子部品外装用の熱硬化性樹脂組成物において、機械的強度の向上および耐湿性の向上を図ろうとするものである。

【0007】

【課題を解決するための手段】 本発明者は、電子部品外装用の熱硬化性樹脂組成物において、機械的強度の向上は耐衝撃性の向上に結びつき、耐湿性の向上は電子部品の信頼性を向上させるための不可欠の要因であるため、これらの樹脂特性の改良を行なった結果、臭素化エポキシ樹脂を含むエポキシ樹脂、水酸化アルミニウムを含む無機充填剤、ならびに、着色顔料、レオロジーコントロール剤および硬化剤を含む添加剤を混合して得られた熱硬化性樹脂組成物は、難燃性を有するとともに、難燃性を有しない汎用タイプの樹脂組成物よりも優れた耐湿性および機械的強度を与えることが可能であることを見出した。

【0008】 すなわち、この発明にかかる難燃性エポキシ樹脂組成物は、エポキシ樹脂（A）、無機充填剤（B）、ならびに、着色顔料、レオロジーコントロール剤および硬化剤を含む添加剤（C）よりなり、エポキシ樹脂（A）および無機充填剤（B）の割合が、A、BおよびCの総重量に対して、それぞれ、10～12重量%および75～77重量%の範囲にあり（ただし、A、BおよびC成分の合計は100重量%とする。）、エポキシ樹脂は、エポキシ樹脂総重量に対して臭素が14～16重量%の範囲になるように、臭素化エポキシ樹脂を含む、無機充填剤は、無機充填剤総重量に対して12～22重量%の範囲で水酸化アルミニウムを含むことを特徴としている。

【0009】 この発明で用いられるエポキシ樹脂は、1分子中に2個以上のエポキシ基を有する化合物であれば、その化学的構造または平均分子量に関係なく、いずれでも使用し得る。すなわち、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールD型エポキシ樹脂などのビスフェノールエポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂などのノボラック型エポキシ樹脂、ビニルクロヘキセンオキサイド、ジシクロペンタジエンジオキサイドなどの脂環型エポキシ樹脂などが広範囲に含まれる。そのうちでも、常に好ましいのは、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ノボラック型エポキシ樹脂などである。これらエポキシ樹脂の平均分子量は、樹脂の種類によっても異なるが、ビスフェノールA型エポキシ樹脂の場合には、380～2900のもの好ましい。平均分子量が380～2900以外の場合には、塗装作業性が低下し、また、塗膜強度が弱くなる。

【0010】 また、臭素化エポキシ樹脂は、テトラブロムビスフェノールAとエピクロヒドリンとの反応物、またはビスフェノールA型エポキシ樹脂とテトラブロム

ルノブラックとエポキシロジンとの反応物などが用いられる。臭素化エポキシ樹脂の臭素含有率に特に制限はないが、臭素がエポキシ樹脂総重量に対して14～16重量%の範囲になるように含むことが必要である。臭素が14重量%未満では、十分に高度な難燃性が得られないことがある。他方、臭素が16重量%を超えると、耐湿性が著しく低下する。

【0011】また、無機充填剤は、酸化珪素、水酸化アルミニウム、アルミナ、タルク、クレー、マイカ、炭酸カルシウム、珪酸カルシウム、石英ガラス、ガラスパウダー、短ガラス繊維、硫酸バリウム、ホワイトカーボンなどが用いられる。粒形は、目的の流動特性により使い分けられ、粒径は、1～50 μ mのものが好ましくは用いられる。粒径が1 μ m未満の場合、著しく塗装作業性が悪くなる。他方、粒径が50 μ mを超えると、塗料化しときに沈殿分離が起こりやすくなり、塗膜表面の平滑性が失われることがある。また、表面処理を施した無機充填剤も用いることができる。

【0012】また、添加剤は、着色顔料、レオロジーコントロール剤および硬化剤から主として構成されるが、必要に応じて、可塑性付与剤、分散剤、難燃助剤、カップリング剤、硬化促進剤、消泡剤、脱泡剤、皮張り防止剤などを、諸特性を低下させない程度において加えることができる。

【0013】着色顔料は、白色顔料、無機着色顔料、有機着色顔料および防錆顔料などがそれぞれ必要に応じて用いられる。白色顔料としては、酸化チタン（アナターゼ、ルチル）、酸化亜鉛、リトボンなどを挙げることができる。また、無機着色顔料としては、酸化鉄（I）、酸化鉄（III）、アンバー、酸化鉄イエロー、チタニイエロー、グラファイト、カーボンブラックなどを挙げることができ、有機着色顔料としては、チオインジゴブルー、ボンバルンライト、パーマネントレッドF5R、パーマネントレッド4R、パーマネントカーミンF8、キナクリッドレッド、プロムアレザンスロンスカレット、インダンスレンブリアントオレンジG R、ベンジンイエロー、ハンザイエロー、フラバンスロンイエロー、ニッケルシアノイエロー、塩素化銅フタロシアニン、塩臭素化銅フタロシアニン、フタロシアニンブルー、インダンスロンブルー、ジョキシンバイオレットなどを挙げることができる。また、防錆顔料としては、亜鉛化鉛、ジンクロメート（ZPC、ZTO）、鉛酸カルシウムなどを挙げることができる。

【0014】レオロジーコントロール剤は、樹脂組成物に溶剤を加えて塗料化したとき、たれを防止するための添加剤で、脂肪族炭化水素カルシウムや珪酸マグネシウムなどの不定形粘土質、超微結晶性珪素などの無機系緩変剤、両性ポリアミド、水添ヒマシ油などの有機系緩変剤、さらに必要に応じて各種の増粘剤、レベリング剤などを挙げることができる。

【0015】硬化剤としては、フェノールノブラック、クレゾールノブラックなどのノブラック系硬化剤、無水フタル酸、無水トクロヒドロフタル酸、無水ヘキサヒドロフタル酸、無水ピロメリット酸などの酸無水物系硬化剤、ジアミノジフェニルメタン、ジアミノジフェニルメロン、メタフェニレンジアミンなどのアミン系硬化剤などが挙げられ、使用するエポキシ樹脂に対して適宜の量で用いられる。

【0016】可塑性付与剤は、樹脂組成物の靱性、可塑性、付着性を向上させるために添加するもので、ビニルモノマー、ダイマー酸などの長鎖炭化水素、またはシリコーンゴム、ステレンゴム、CTBN、ATBNなどのゴム類、ブチアル樹脂、フェノキシ樹脂などの熱可塑性樹脂を使用することができる。

【0017】分散剤は、顔料に作用してビヒクル中によく分散し沈殿するのを防止するための添加剤で、有機の両性化合物やそれらを吸着した無機の不定形非晶質化合物などを挙げる事ができる。

【0018】難燃助剤としては、三酸化二アンチモン、四酸化二アンチモン、十三酸化六アンチモンなどの酸化アンチモンが使われる。この際、添加量は、臭素量の50重量%程度が望ましい。

【0019】カップリング剤としては、エポキシ基、ビニル基、アミノ基、メタクリレート基、メルトカプト基などを有する各種シランカップリング剤や各種チタニ化合物を挙げることができる。添加量としては、無機充填剤（B）100重量部に対して、1重量部以下の量でよいとされている。

【0020】硬化促進剤は、各種イミダゾール類、第三級アミン酸、三非化ホウ素化合物などが用いられる。この際、添加量は、エポキシ樹脂の総重量に対して、0.5重量%程度が望ましい。少なすぎると、硬化促進効果が得られず、他方、多すぎると、ポットライフが短くなることがある。

【0021】消泡剤としては、低分子アルカノールアミン、中級脂肪族アルコールなどを、また、脱泡剤としては、アルミニウムや亜鉛のステアリン酸塩、吸油量の大きな非晶質珪酸化合物などを、また、皮張り防止剤としては、ハイドロキノンやケトオキシム系の化合物などを用いることができる。

【0022】前述したように、この発明による難燃性を有する熱硬化性樹脂組成物は、これらエポキシ樹脂（A）、無機充填剤（B）、ならびに、着色顔料、レオロジーコントロール剤および硬化剤を含む添加剤（C）とより主としてなる混合物である。ここで、この混合物中に占めるAおよびBそれぞれの割合は、9～1重量%および76～78重量%の範囲にあることが必要である。このような範囲から外れると、樹脂混合物に良好な樹脂特性を付与することができない。すなわち、エポキシ樹脂が9重量%未満では、塗装作業性、耐湿性、機械

的強度が低下し、また、外装膜上にピンホールやボイドが発生しやすくなる。他方、エポキシ樹脂が1重量%を超えると、乾燥性および難燃性が低下する。また、無機充填剤が7重量%未満では、硬化収縮や熱膨張が大きくなるため、樹脂特性に悪影響を及ぼす。他方、無機充填剤が7重量%を超えると、塗装作業性が著しく悪くなり、機械的強度も低下する。

【0023】この発明による熱硬化性樹脂組成物は、たとえ、Aを溶媒に溶解して溶液にした後、BおよびCを添加し、混合攪拌して製造されることができる。

【0024】

【発明の効果】この発明にかかる難燃性エポキシ樹脂組成物によれば、従来から知られている難燃性の熱硬化性樹脂組成物よりも、機械的強度および耐湿性に優れているため、これを外装用材料として用いたとき、電子部品の信頼性を向上させることができる。

【0025】

【実施例】以下に、この発明にかかる難燃性エポキシ樹脂組成物を、その実施例について詳細に説明する。

【0026】エポキシ樹脂(A)として、ビスフェノールA型エポキシ樹脂(エポキシ当量450~500;「A1」とノボラック型エポキシ樹脂(エポキシ当量200~220;「A2」)を、臭素化エポキシ樹脂として、テトラプロムビスフェノールAとエピクロロヒドリンとの反応物(エポキシ当量600~650、臭素含有量47~51重量%;「A3」)をそれぞれ用いた。また、無機充填剤(B)としては、タルク(B1)、非晶質球状酸化珪素(粒径1~50 μm ;「B2」)および水酸化アルミニウム(粒径1~15 μm ;「B3」)を用いた。

【0027】また、添加剤(C)については、着色顔料として、酸化チタンおよびクロムフタルブルーを、レオロジーコントロール剤として、脂肪酸処理炭酸カルシウ*

*ムを、硬化剤として、フェノールノボラック(フェノール当量120)を、さらに難燃助剤として、三酸化二アンチモンを、硬化促進剤として、イミダゾールをそれぞれ用いた。

【0028】実施例1

エポキシ樹脂(A)としては、ビスフェノールA型エポキシ樹脂(A1)とノボラック型エポキシ樹脂(A2)とを1:1の重量比で用い、無機充填剤(B)としては、タルク(B1)および酸化珪素(B2)を1:7の重量比で用いた。また、各種の添加剤(C)については、樹脂組成物の総重量に対して、酸化チタンを4重量%、クロムフタルブルーを0.6重量%、脂肪酸処理炭酸カルシウムを3重量%、フェノールノボラックをフェノール当量とエポキシ当量とが同じになるように3~4重量%に固定し、イミダゾールについては、エポキシ樹脂の総重量に対して0.5重量%となるように固定した。

【0029】樹脂組成物の製造は、次のように行なった。2種のエポキシ樹脂(A1、A2)をメチルエチルケトンに溶解させ、ワニスとした。このワニスに各種の添加剤(C)を加えて攪拌し、その後、無機充填剤(B)を加えて、メチルエチルケトン樹脂組成物100重量部に対して27重量部となるように加え、十分に混和させた。なお、一連の作業は、グラネタリーミキサーで行なった。

【0030】得られた樹脂組成物の評価は次のように行なった。得られた樹脂組成物を用いて電子部品に外装し、塗装作業性に問題のないことを確認してから、試験片および試験用素子を作製し、目的の樹脂物性、すなわち、難燃性、機械的強度および耐湿性を評価した。その結果が、以下の表1に示されている。

【0031】

【表1】

| No. | (A) | (B) | (C) | 難燃性 | 機械的強度 | 耐湿性 |
|-----|-----|-----|-----|-----|-------|-----|
| 1 | 9 | 78 | 13 | 丙 | 乙 | 甲 |
| 2 | 10 | 77 | 13 | 丙 | 甲 | 甲 |
| 3 | 11 | 76 | 13 | 丙 | 甲 | 甲 |
| 4 | 12 | 75 | 13 | 丙 | 甲 | 甲 |
| 5 | 13 | 74 | 13 | 丙 | 甲 | 甲 |

表1において、難燃性および機械的強度については、150℃/30分で後硬化させた試験片を用いた。ここで、難燃性は、UL94に従い、1/32インチ厚で行なった。評価は、UL94 V-0のときを甲、V-1のときを乙、V-2未満のときを丙とした。また、機械的強度は、JIS K6911に準じて曲げ強度を測定した。評価は、4.0 Kgf/mm²以上を甲、3.0 Kgf/mm²以上4.0 Kgf/mm²未満を乙、※50

※3.0 Kgf/mm²未満を丙とした。また、耐湿性については、セラミック基板に電極を複数個独立に印刷し、それぞれの電極から半田付けによりリード線を引き延ばした構造となっている電子部品に、樹脂組成物を浸漬法で塗装したものを、試験用素子として、超加速寿命試験機で121℃/2atmの試験条件下で100時間経過後の絶縁抵抗値を測定した。評価は、試験前に10¹¹Ω以上であった絶縁抵抗値が、試験後に10⁹Ω以上

であれば甲、10²Ω以上10³Ω未満であれば乙、10³Ω未満であれば丙とした。

【0032】表1からわかるように、エポキシ樹脂(A)が樹脂組成物に対して10重量%以上となるN_o. 2〜5において、機械的強度と耐湿性が優れたものが得られた。なお、N_o. 5は、乾燥性が著しく低下した。

【0033】実施例2

実施例1において機械的強度、耐湿性および乾燥性が良*

*好であったN_o. 2およびN_o. 4の配合比率において、ビスフェノールA型エポキシ樹脂(A1)の一部を臭素化エポキシ樹脂(A3)に、無機充填剤(B)の酸化珪素(B2)の一部を水酸化アルミニウム(B3)に置換した。その他の製造条件および評価方法は、実施例1と同様である。得られた樹脂組成物の評価結果が、以下の表2に示されている。

【0034】

【表2】

| No. | (A3) | (B3) | 難燃性 | 機械的強度 | 耐湿性 |
|------|------|------|-----|-------|-----|
| 2-1 | 20 | 0 | 丙 | 甲 | 甲 |
| 2-2 | 25 | 0 | 丙 | 甲 | 甲 |
| 2-3 | 30 | 0 | 丙 | 甲 | 甲 |
| 2-4 | 35 | 0 | 丙 | 甲 | 甲 |
| 2-5 | 40 | 0 | 甲 | 甲 | 丙 |
| 2-6 | 20 | 7 | 丙 | 甲 | 甲 |
| 2-7 | 25 | 7 | 丙 | 甲 | 甲 |
| 2-8 | 30 | 7 | 丙 | 甲 | 甲 |
| 2-9 | 35 | 7 | 丙 | 甲 | 甲 |
| 2-10 | 40 | 7 | 甲 | 甲 | 丙 |
| 2-11 | 20 | 12 | 丙 | 甲 | 甲 |
| 2-12 | 25 | 12 | 甲 | 甲 | 甲 |
| 2-13 | 30 | 12 | 甲 | 甲 | 甲 |
| 2-14 | 35 | 12 | 甲 | 甲 | 甲 |
| 2-15 | 40 | 12 | 甲 | 甲 | 丙 |
| 2-16 | 20 | 17 | 丙 | 甲 | 甲 |
| 2-17 | 25 | 17 | 甲 | 甲 | 甲 |
| 2-18 | 30 | 17 | 甲 | 甲 | 甲 |
| 2-19 | 35 | 17 | 甲 | 甲 | 甲 |
| 2-20 | 40 | 17 | 甲 | 甲 | 丙 |
| 2-21 | 20 | 22 | 甲 | 甲 | 甲 |
| 2-22 | 25 | 22 | 甲 | 甲 | 甲 |
| 2-23 | 30 | 22 | 甲 | 甲 | 甲 |
| 2-24 | 35 | 22 | 甲 | 甲 | 甲 |
| 2-25 | 40 | 22 | 甲 | 甲 | 丙 |
| 2-26 | 20 | 27 | 甲 | 丙 | 甲 |
| 2-27 | 25 | 27 | 甲 | 丙 | 甲 |
| 2-28 | 30 | 27 | 甲 | 丙 | 甲 |
| 2-29 | 35 | 27 | 甲 | 丙 | 乙 |
| 2-30 | 40 | 27 | 甲 | 丙 | 丙 |
| 4-1 | 25 | 12 | 甲 | 甲 | 甲 |
| 4-2 | 25 | 22 | 甲 | 甲 | 甲 |
| 4-3 | 35 | 12 | 甲 | 甲 | 甲 |
| 4-4 | 35 | 22 | 甲 | 甲 | 甲 |

表2から、臭素量がエポキシ樹脂総重量に対して14〜16重量%の範囲であって、なおかつ水酸化アルミニウムが無機充填剤総重量に対して12〜22重量%の範囲※50

※のときに、難燃性、機械的強度および耐湿性がいずれも極めて良好となった。